

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESEN

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT (Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 24 NOV 2004

WIPO

PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts B02/0517PC	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/09057	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 14.08.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 16.08.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C5/333		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  18.02.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  23.11.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Bedel, C Tel. +49 89 2399-2506 

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-11 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-11 eingegangen am 04.10.2004 mit Telefax

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,      Seiten:
- ☐ Ansprüche,      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,      Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |                      |
|--------------------------------|----------------------|
| 1. Feststellung                |                      |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche        |
|                                | Nein: Ansprüche 1-11 |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche        |
|                                | Nein: Ansprüche 1-11 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-11  |
|                                | Nein: Ansprüche:     |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

Die mit Schreiben vom 4-10-04 eingereichten Änderungen bringen Sachverhalte ein, die im Widerspruch zu Artikel 34(2)(b) PCT über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgehen. Es handelt sich dabei um folgende *Änderungen*: "ein isothermes Verfahren zur Dehydrierung von Alkanen *in Abwesenheit von Sauerstoff* zu den entsprechenden Alkenen, *bei dem reagierenden Gasgemisch von außen Wärme zugeführt wird, indem der Reaktor von außen beheizt wird*, an einer Katalysatorschüttung enthaltend dehydrieraktiven Katalysator und katalytisch inaktives Verdünnungsmaterial."

In der Beschreibung ist die Abwesenheit von Sauerstoff immer in Verbindung mit besonderen Reaktionsbedingungen wie in den Beispielen betrachtet.

Es wird auf die folgende Dokumente verwiesen:

D1: DE 197 34 541 A (INN ANGEWANDTE CHEMIE BERLIN) 4. Februar 1999 (1999-02-04)

D2: FR-A-2 748 021 (ATOCHEM ELF SA) 31. Oktober 1997 (1997-10-31)

D3: DE 23 55 535 A (BASF AG) 22. Mai 1975 (1975-05-22)

D1 offenbart ein autothermes Verfahren zur katalytischen oxidativen Dehydrierung von C2-C4 Alkanen zu den entsprechenden Olefinen in Anwesenheit von Sauerstoff. Der Katalysator ist in einem Festbettreaktor mit einer Inertschüttung wie Quarz oder Aluminiumoxid fluidisiert (Seite 3, Zeile 8-18 sowie Ansprüche 13-14).

D3 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Styrol durch Dehydrierung von Äthylbenzol in Abwesenheit von Sauerstoff und in Gegenwart eines Metall-Oxid-Katalysators. Die aktiven Komponenten dieses Katalysators sind in einer Schicht von 0,01 bis 2 mm Dicke auf einem inerten Träger niedergeschlagen (Ansprüche).

D2 beschreibt ein isothermes Verfahren (siehe Seite 7, Zeile 1-9) zur katalytischen oxidativen Dehydrierung von Alkanen zu den entsprechenden Monoolefinen in Anwesenheit von Sauerstoff. Der Katalysator wird auch mit Verdünnungsmaterial wie Steatitkugeln fluidisiert, um die Bildung von "Hot spots" entlang des Katalysatorbetts zu verringern (siehe Seite 6, Zeile 8-14), d.h. um die Ausbildung von Temperaturgradienten zu vermeiden (wie in vorliegenden Anmeldung).

Im Hinblick auf dieses Dokument (D2) wird das Verfahren der vorliegenden Ansprüche 1-11 nicht mehr als neu angesehen (Art.33-2 PCT).

**Patentansprüche**

- 5 1. Isothermes Verfahren zur Dehydrierung von Alkanen in Abwesenheit von Sauerstoff zu den entsprechenden Alkenen, bei dem dem reagierenden Gasgemisch von außen Wärme zugeführt wird, indem der Reaktor von außen beheizt wird, an einer Katalysatorschüttung enthaltend einen dehydrieraktiven Katalysator, dadurch gekennzeichnet, dass die Katalysatorschüttung katalytisch inaktives, inertes  
10 Verdünnungsmaterial enthält.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das katalytisch inaktive, inerte Verdünnungsmaterial ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus den Oxiden der II., III. und IV. Hauptgruppe, der III., IV. und V. Nebengruppe und  
15 deren Gemischen, sowie aus Nitriden und Carbiden von Elementen der III. und IV. Hauptgruppe.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das katalytisch inaktive, inerte Verdünnungsmaterial ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus  
20 Magnesiumoxid, Aluminiumoxid, Siliciumdioxid, Steatit, Titandioxid, Zirkondioxid, Nioboxid, Thoriumoxid, Aluminiumnitrid, Siliciumcarbid, Magnesiumsilikat, Aluminiumsilikat, Ton, Kaolin, Bims und deren Gemischen.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass das  
25 katalytisch inaktive, inerte Verdünnungsmaterial eine BET-Oberfläche von  $< 10 \text{ m}^2/\text{g}$  aufweist.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass das  
30 katalytisch inaktive, inerte Verdünnungsmaterial einen Wärmeleitkoeffizienten von  $> 0,04 \text{ W}/(\text{m} \times \text{K})$  aufweist.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass durch  
35 die Gegenwart des katalytisch inaktiven Verdünnungsmaterials in der Katalysatorschüttung die Raum/Zeit-Ausbeute, bezogen auf gebildetes Alken, auf  $7,0 \text{ kg}/(\text{kg}_{\text{Schüttung}} \times \text{h})$  begrenzt wird.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass das katalytisch inaktive, inerte Verdünnungsmaterial in Form von Formkörpern, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Tabletten bzw. Stränge mit einem Durchmesser von im Mittel 2 bis 8 mm, einer Höhe von im Mittel 2 bis 16 mm, wobei die Höhe das 0,5 bis 4-fache des Durchmessers beträgt, Ringen bzw. Hohlsträngen mit einem Außendurchmesser und einer Höhe von im Mittel 6 bis 20 mm, wobei die Höhe das 0,5 bis 4-fache des Durchmessers und die Wandstärke das 0,1 bis 0,25-fache des Durchmessers beträgt, und Kugeln mit einem Durchmesser von im Mittel 1 bis 5 mm, enthalten ist.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass der Leerraumanteil der Schüttung mindestens 30% beträgt.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass der dehydrieraktive Katalysator ein oder mehrere Elemente der VIII. Nebengruppe, ein oder mehrere Elemente der I. und/oder II. Hauptgruppe, ein oder mehrere Elemente der III. Nebengruppe einschließlich der Lanthaniden und Actiniden und ein oder mehrere Elemente der III. und/oder IV. Hauptgruppe auf einem oxidischen Träger enthält.
10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass es in einem Rohr- oder Rohrbündelreaktor durchgeführt wird.
11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass Propan dehydriert wird.

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT/EP2003/009057



# PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference B02/0517PC	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/009057	International filing date ( <i>day/month/year</i> ) 14 August 2003 (14.08.2003)	Priority date ( <i>day/month/year</i> ) 16 August 2002 (16.08.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 5/333		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.
- ☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 18 February 2004 (18.02.2004)	Date of completion of this report 23 November 2004 (23.11.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/009057

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages 1-11, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages 1-11, filed with the letter of 04 October 2004 (04.10.2004)
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/09057

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1-11	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-11	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

The amendments submitted with the letter of 4 October 2004 introduce substantive matter which, contrary to PCT Article 34(2)(b), goes beyond the disclosure in the international application as filed. This concerns the following amendments: "an isothermal method of dehydrogenating alkanes *in the absence of oxygen* to form the corresponding alkenes, wherein heat is supplied from the exterior to the reactive gas mixture as a result of the reactor being heated from the exterior, on a catalyst bed containing dehydrogenating-active catalyst and catalytically inactive diluent material."

In the description, the absence of oxygen is always considered in conjunction with special reaction conditions, as in the examples.

Reference is made to the following documents:

D1: DE 197 34 541 A (INN ANGEWANDTE CHEMIE BERLIN)  
4 February 1999 (1999-02-04)

D2: FR-A-2 748 021 (ATOCHEM ELF SA) 31 October 1997  
(1997-10-31)

D3: DE 23 55 535 A (BASF AG) 22 May 1975 (1975-05-22)

D1 discloses an autothermal method for the catalytic oxidative dehydrogenation of C2-C4 alkanes to form the corresponding olefins in the presence of oxygen. The catalyst is fluidized in a fixed bed reactor with an inert bed, such as quartz or aluminium oxide (page 3, lines 8 to 18, and claims 13 and 14).

D3 describes a method of producing styrene by dehydrogenating ethyl benzene in the absence of oxygen and the presence of a metal oxide catalyst. The active components of this catalyst are deposited in a layer 0.01 to 2 mm thick on an inner substrate (claims).

D2 describes an isothermal method (see page 7, lines 1 to 9) for the catalytic oxidative dehydrogenation of alkanes to form the corresponding monoolefins in the presence of oxygen. The catalyst is also fluidized with diluent material, such as grains of steatite, in order to reduce the formation of hot spots along the catalyst bed (see page 6, lines 8 to 14), i.e. in order to prevent temperature gradients from forming (as in the present application).

In light of D2, the method according to the current claims 1 to 11 can no longer be considered novel (PCT Article 33(2)).